



PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Docket No: Q76996

Hirokazu UEJIMA, et al.

Appln. No.: 10/643,081

Group Art Unit: Unknown

Confirmation No.: 3059

Examiner: Unknown

Filed: August 19, 2003

For: SEPARATOR FOR FUEL CELL AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENTS

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Submitted herewith are two (2) certified copies of the priority documents on which claims to priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said priority documents.

Respectfully submitted,

SUGHRUE MION, PLLC
Telephone: (202) 293-7060
Facsimile: (202) 293-7860

WASHINGTON OFFICE

23373

CUSTOMER NUMBER

[Signature] Reg. No. 38,557
Darryl Mexic
Registration No. 23,063

Enclosures: JAPAN 2002-240525
JAPAN 2003-034668

Date: January 7, 2003

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 8 月 2 1 日
Date of Application:

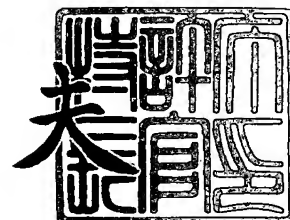
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 2 4 0 5 2 5
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 2 4 0 5 2 5]

出 願 人 株式会社日本製鋼所
Applicant(s):

2 0 0 3 年 9 月 1 9 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康



【書類名】 特許願

【整理番号】 H14102

【提出日】 平成14年 8月21日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明の名称】 燃料電池用セパレータおよびその製造方法

【請求項の数】 5

【発明者】

【住所又は居所】 北海道室蘭市茶津町 4 番地 株式会社日本製鋼所内

【氏名】 上嶋 宏和

【発明者】

【住所又は居所】 北海道室蘭市茶津町 4 番地 株式会社日本製鋼所内

【氏名】 山村 美彦

【発明者】

【住所又は居所】 北海道室蘭市茶津町 4 番地 株式会社日本製鋼所内

【氏名】 西谷 信一

【特許出願人】

【識別番号】 000004215

【氏名又は名称】 株式会社日本製鋼所

【代理人】

【識別番号】 100091926

【弁理士】

【氏名又は名称】 横井 幸喜

【電話番号】 03(5476)5707

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 020329

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9710863

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータおよびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 金属材料からなる基材の表面に導電性高分子膜が被覆されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 前記導電性高分子膜は焼付処理が施されていないことを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 金属材料からなる基材の表面に電解重合法により導電性高分子膜を被覆することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 4】 金属材料からなる基材に曲げ加工により溝状のガス流通路を形成した後、該基材の表面に電解重合法により導電性高分子膜を被覆することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 5】 前記基材を電解重合用電極にして電解重合を行うことを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電極に隣接して設けられる燃料電池用セパレータおよびその製造方法に関するものである。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

固体高分子型燃料電池は、イオン交換膜からなる電解質、およびその両側に設けた電極、さらにその両側に配置されたセパレータからなるセルを複数積層することにより構成されている。セパレータは、両電極に水素等の燃料ガスおよび酸素等の酸化剤ガスをそれぞれ供給する溝状の流通路を有し、前記電極に接して電流を導出する集電部材として作用する。

このためセパレータに求められる性能としては、燃料ガスと酸化剤ガスを完全に分離して供給するためのガス不透過性、電圧降下による性能低下を防ぐための良導電性および低接触抵抗、また pH が 3 以下の酸性雰囲気であることから耐食

性、衝撃等による破損を防ぐための機械的特性等が重要になる。そしてセパレータは1個の燃料電池に、数十から数百個使用されることから、安価で生産性に優れることが要求される。

【0 0 0 3】

【発明が解決しようとする課題】

上記セパレータは、一般には緻密性グラファイトや、ステンレス鋼、アルミニウム合金などの金属材料で構成されている。しかしながら、緻密性グラファイトは脆い材料であることから、溝状のガス流通路の切削加工等の機械加工で形成することは容易ではなく、加工コストが非常に高いこと等から量産性が劣るという問題がある。一方、金属材料からなるセパレータは、強度・延性に優れることからプレス加工等によるガス流通路の成型が可能であり、加工コストが低く大量生産に適している。

【0 0 0 4】

しかしながら、セパレータの使用環境は、前記したようにpHが約3の酸性雰囲気であり、耐食性に劣る金属材料製のセパレータでは、容易に腐食されて金属イオンが溶出し電極が劣化するという問題点がある。そのため、セパレータにステンレス鋼等の耐食性の優れる金属材料を使用することが考えられるが、耐食性が優れる金属材料であっても、金属表面に生成される不動態皮膜が、セパレータと電極との接触抵抗を増大させ、セパレータの集電性能を低下させるという問題点がある。

これらの問題に対処すべく、金属材料製セパレータの表面を、接触抵抗および耐食性に優れるAu等の貴金属材料で被覆する対策も考えられるが、貴金属の被覆材は非常に高価であり、これを数多く使用する燃料電池では当然にコストが上昇するという問題がある。

【0 0 0 5】

本発明は、上述の問題点を解決するために、量産性に優れた金属材料を基材とし、その基材表面に接触抵抗および耐食性に優れた被覆を施して、安価で量産性に優れた燃料電池用セパレータを提供することを目的とする。

【0 0 0 6】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため本発明の燃料電池用セパレータのうち、請求項 1 記載の発明は、金属材料からなる基材の表面に導電性高分子膜が被覆されていることを特徴とする。

【0 0 0 7】

請求項 2 記載の燃料電池用セパレータの発明は、請求項 1 記載の発明において、前記導電性高分子膜は焼付処理が施されていないことを特徴とする。

【0 0 0 8】

さらに本発明の燃料電池用セパレータの製造方法のうち請求項 3 記載の発明は、金属材料からなる基材の表面に電解重合法により導電性高分子膜を被覆することを特徴とする。

【0 0 0 9】

請求項 4 記載の燃料電池用セパレータの製造方法は、金属材料からなる基材に曲げ加工により溝状のガス流通路を形成した後、該基材の表面に電解重合法により導電性高分子膜を被覆することを特徴とする。

【0 0 1 0】

請求項 5 記載の燃料電池用セパレータの製造方法は、請求項 3 または 4 に記載の発明において、前記基材を電解重合用電極にして電解重合を行うことを特徴とする。

【0 0 1 1】

すなわち、本発明によれば、金属材料を基材として、その両面に導電性高分子が被覆された構造のセパレータが得られるので、金属材料により機械的特性、ガス不透過性に優れた特性が得られる。そして金属材料の表面に被覆した導電性高分子は、金属基材表面に生成する不動態皮膜の成長を抑止し、セパレータと電極との接触抵抗の増大を抑制して、良好な集電性能を保つことができる。さらに導電性高分子は、耐食性に優れ、金属基材の腐食を防止し、電極に有害な作用を及ぼす金属イオンの溶出を抑制する。導電性高分子で被覆した金属製セパレータは、材料および被覆費用が安価であり、かつ優れた量産性を有する特徴がある。

【0 0 1 2】

また、導電性高分子は、塗装法や電解重合法により被覆できるが、特に電解重合法によれば、焼付処理が不要であり、焼付時に発生しやすい基材の不動態化を避けることができる。また、電解重合法により、基材表面に緻密な被膜が形成され、基材の腐食を一層効果的に防止する。導電性高分子の重合法としては、塗装・焼付法（以下塗布法という）も考えられる。前記塗布法では、例えば化学的重合法等により予め合成しておいた導電性高分子であるポリアニリンを、有機溶媒に溶解し、これを基材表面に塗布し、乾燥・加熱（焼付け）することにより導電性高分子被膜を得る方法である。

【0013】

しかし、電解重合法は塗装・焼付法に比べて被膜欠陥が少なく、導電性が良く、生産性に優れ、安定した品質を有する被膜が得られる。導電性高分子膜は、若干の非常に微小な欠陥を有するが、電解重合法は塗布法に比べて欠陥の少ない被膜が得られる。また、良好な導電性を得るためには被膜厚さは薄い方が好ましいが、電解重合法は塗布法に比べて薄く強固な被膜が得られ、金属材料との密着性も良く、安定した被膜厚さが得られる。生産性においては、電解重合法は電気化学的に金属表面に導電性高分子膜を直接合成するために、塗布法に比べて、工程数が格段に少なく、また有機溶媒等の廃液量が少ない利点を有する。このため、導電性高分子の被覆膜形成方法としては電解重合法が好適といえる。

【0014】

電解重合法においては、基材を電極にして電解することにより、基材表面に上記被膜を均一に形成することができる。電解重合法は、例えばポリアニリンの被膜を形成する場合には、モノマーとしてアニリンを溶解した水溶液中で、セパレータ金属基材を陽極として電解することにより、導電性高分子であるポリアニリンの被膜を金属表面に電気化学的に直接合成して導電性高分子膜を得る。

【0015】

また、電解重合前に、基材をプレス加工等の曲げ加工により溝状のガス流通路を形成しておけば、該流通路の形成に際し、導電性高分子膜を損傷することがなく、該高分子膜の作用を確実に得ることができる。なお、電解重合に際し、上記のように基材を電極にして電解を行えば、上記のようにガス流通路の形成により

基材表面が凹凸面となっておいても上記高分子膜を均等に形成することが可能になり、安定した性能が得られる。

【0016】

なお、本発明の基材に用いる金属材料として、ステンレス鋼、アルミニウム、チタン等の耐食性に優れた材料が好ましいが、これら以外の材料、例えばニッケル、銅、鉄およびこれらの合金等にも適用でき、金属材料全般に適用できる。

また、導電性高分子としては、ポリアニリン、ポリピロール等の導電性を有する高分子が挙げられるが、本発明としては、これらに限定されるものでなく、その他の導電性高分子、例えばポリアセチレン、ポリパラフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリフェニレンサルファイド、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリペリナフタレン、ポリアクリロニトリル、ポリオキサジアゾール、ポリ[F_eフタロシアニン(テトラジン)]なども使用できる。また、導電性高分子としては、材料の本質として導電性を有するものの他、高分子に導電性を有する物質を加えて導電性を保持させるものであってもよい。

【0017】

【発明の実施の形態】

次に、本発明の一実施形態を添付図に基づいて説明する。

図1に示すように、適宜の金属材料からなる板形状の基材1を用意する。金属材料としては、ステンレス鋼、鉄、アルミニウム、チタン、ニッケル、銅およびこれらの合金等が挙げられる。

この基材1に対し、溝状のガス流通路1aを形成するようにプレス加工する。次いで、該基板1の表面に導電性を有する高分子膜を被覆するが、被覆前の下地処理として、酸洗等の表面洗浄により金属基材表面を清浄にし、新生面を出すことが望ましい。これは接触抵抗を増大する金属表面の酸化皮膜を取り除くことと、導電性高分子と金属材料の密着性を良好にするためである。

【0018】

次に、上記基材1に導電性高分子の被覆を電解重合法により形成する。電解重合法は、例えばポリアニリンの被膜を形成する場合には、モノマーとしてアニリンを溶解した水溶液中で、基材1を陽極として電解することにより、導電性高分

子であるポリアニリンの皮膜を基材 1 の金属表面に電気化学的に直接合成して導電性高分子膜 2 を得る。上記の工程により燃料電池用セパレータ 10 が製造される。

【0019】

セパレータ 10 は、イオン交換膜からなる電解質 11 と、その両側に設けた電極 12 により構成されるセル間に配置され、該セルが複数積層されて固体高分子型燃料電池が得られる。該構成においてセパレータ 10 は、溝状のガス流通路 1a を介して両電極 12、12 に水素等の燃料ガスおよび酸素等の酸化剤ガスをそれぞれ供給する。また、前記電極 12 に接して電流を導出する集電部材として作用する。

【0020】

【実施例】

次に、本発明の実施例を比較例と比較しつつ説明する。

金属基材としてステンレス鋼 SUS304 を用いた。SUS304 基材は 1 mm 厚さの光輝焼鈍材であり、被覆前の下地処理として、25℃の 7%塩酸水溶液中に、SUS304 基材を 1 時間浸漬して酸洗処理を施した。SUS304 基材は酸洗処理後、水で十分に洗浄を行い、乾燥した。

【0021】

導電性高分子の被覆方法には、電解重合法を使用した。電解液は、1%アニリン水溶液とした。電解浴の温度は 20℃とした。脱気した電解液に上述の酸洗した SUS304 基材を浸漬し、対極に白金板を使用し、SUS304 を陽極としてポリアニリンの電解重合を行った。電解条件は 0.25 mA/cm²、20 分とした。電解終了後、SUS304 基材表面には緻密なポリアニリン被膜が形成された。このポリアニリンで被膜した SUS304 基材を電解液から引き上げ、水で十分に洗浄後、乾燥した。

また、比較のために、SUS304 基材表面に Au メッキを施した比較材 1 と、被覆をしていない比較材 2 とを用意した。

【0022】

上述の方法で作製したポリアニリン被膜 SUS304 基材、メッキ基材および

単独基材の接触抵抗の評価を行った。接触抵抗の評価として、SUS304 基材の被覆面またはメッキ面もしくは単独基材の表面にAuメッキした銅板を重ね、両者の間にはカーボンペーパーを挟み、加圧器でこれらを加圧しながら、SUS304 基材と銅板の間に電圧を負荷したときの電流値を計測した。

【0023】

図3は電流値の測定結果から算出した接触抵抗を示すものである。図から明らかのように、ポリアニリン被膜したSUS304は、被覆しない場合に比べて、接触抵抗値が非常に小さく、接触抵抗の良好なAuメッキを被覆した場合とほぼ同程度の接触抵抗値であり、非常に良好な接触抵抗を有していた。

以上、実施例について説明したが、本発明はこれに限定されるものではないことは当然である。

【0024】

【発明の効果】

以上のように、本発明の燃料電池用セパレータによれば、接触抵抗および耐食性に優れた導電性高分子で被覆した金属製セパレータを得ることができる。

また、本発明の燃料電池用セパレータの製造方法によれば、金属材料からなる基材の表面に電解重合法により導電性高分子膜を被覆するので、焼付時に発生しやすい基材の不動態化を避けることができ、基材表面に緻密な被膜が形成され、基材の腐食を一層効果的に防止する。また安価でかつ生産性に優れる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施形態におけるセパレータの製造工程を示すフロー図である。

【図2】 本発明のセパレータを使用した燃料電池の断面図である。

【図3】 本発明の実施例による接触抵抗の測定結果である。

【符号の説明】

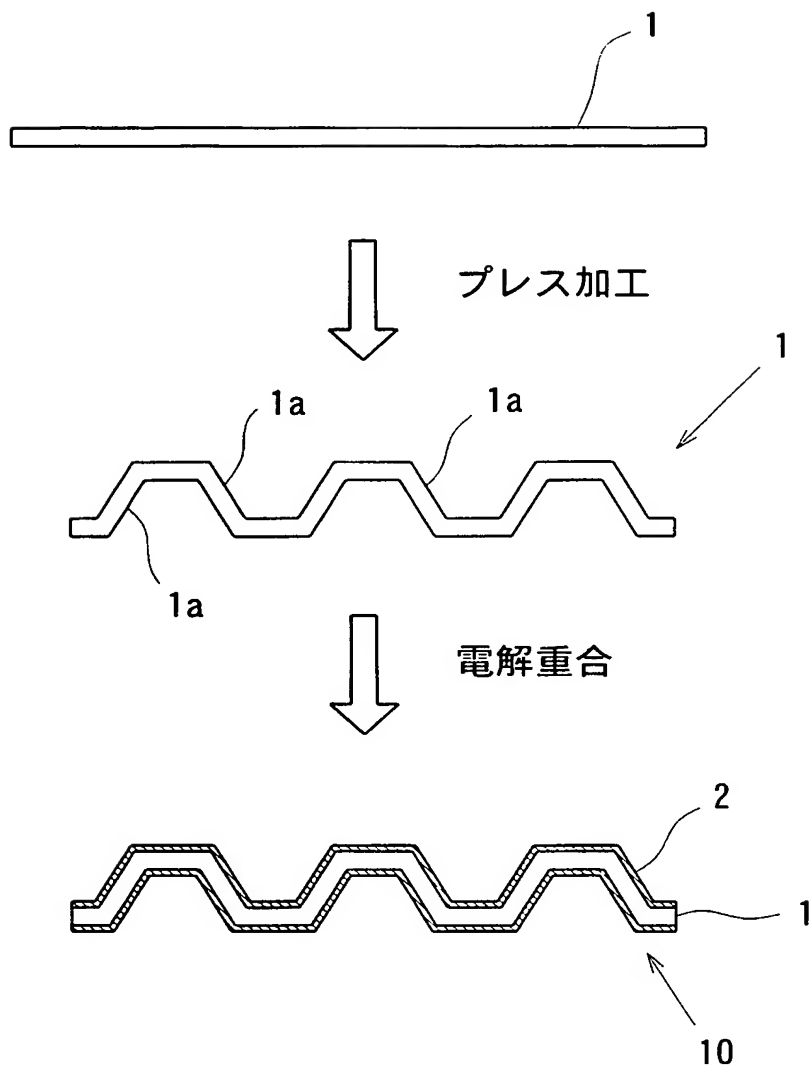
- 1 基材
- 1 a 溝状のガス流通路
- 2 導電性高分子膜
- 10 セパレータ

1 1 電解質

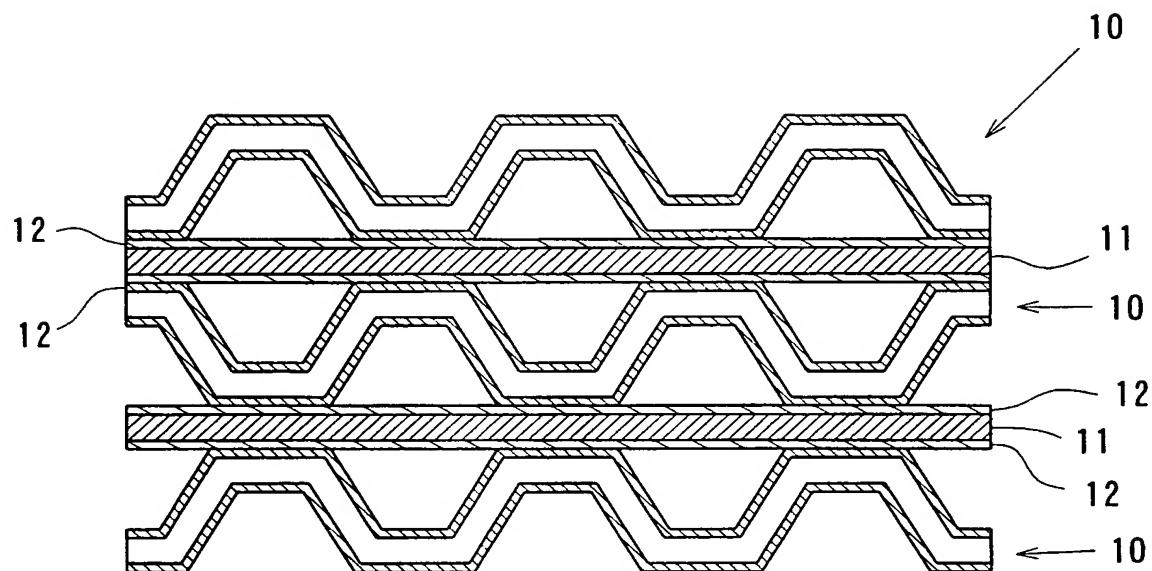
1 2 電極

【書類名】 図面

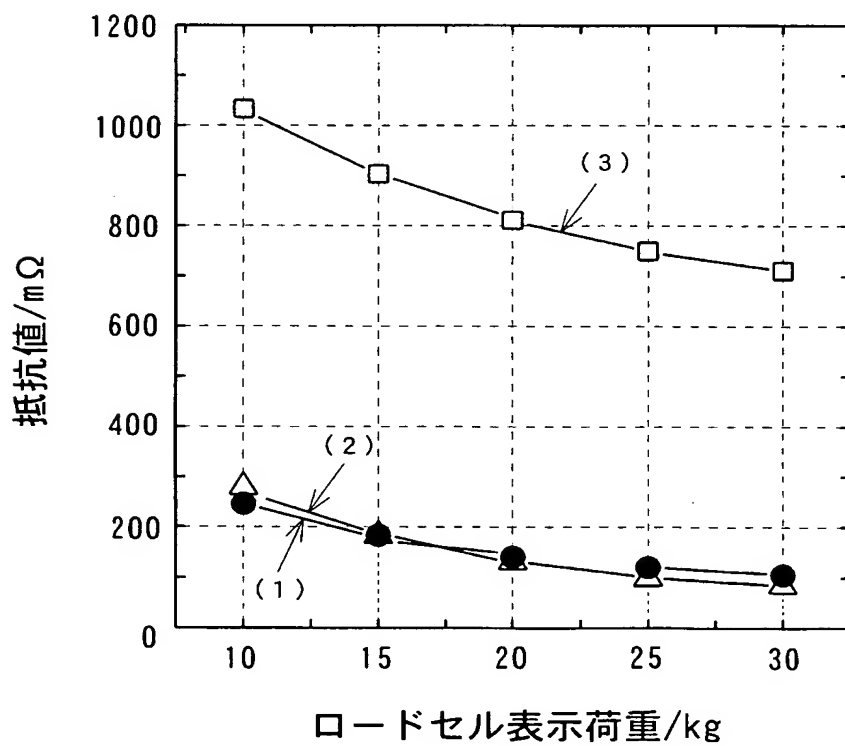
【図 1】



【図2】



【図3】



- (1) 本発明 : SUS304 (ポリアニリン被覆)
(2) 比較材1: SUS304 (Auメッキ)
(3) 比較材2: SUS304 (被覆なし)

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 安価で量産性に優れた燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 金属材料からなる基材 1 の表面に好適には電解重合法により導電性高分子膜 2 を被覆する。電解重合前に、金属材料からなる基材に曲げ加工により溝状のガス流通路を形成するのが望ましく、電解重合時には、基材を電解重合用電極にして電解を行うのが望ましい。

【効果】 接触抵抗および耐食性に優れた導電性高分子で被覆した金属製セパレータが得られ、固体高分子型燃料電池の製造コストを低減できる。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 2 - 2 4 0 5 2 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 4 2 1 5]

1 . 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 3 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区有楽町 1 丁目 1 番 2 号

氏 名

株式会社日本製鋼所